LA PROPRIETE

PCT/FR2004/050109

17 MARS 2004

REÇU 1 8 JUIN 2004 OMPI PCT

## BREVET D'INVENTION

### **CERTIFICAT D'UTILITÉ - CERTIFICAT D'ADDITION**

### COPIE OFFICIELLE

Le Directeur général de l'Institut national de la propriété industrielle certifie que le document ci-annexé est la copie certifiée conforme d'une demande de titre de propriété industrielle déposée à l'Institut.

> 0 1 AVR. 2004 Fait à Paris, le \_

> > Pour le Directeur général de l'Institut national de la propriété industrielle Le Chef du Département des brevets

> > > **Martine PLANCHE**

OCUMENT DE PRIORITÉ

PRÉSENTÉ OU TRANSMIS CONFORMÉMENT À LA **RÈGLE 17.1.a) OU b)** 

BEST AVAILABLE COPY

TRIELLE

SIEGE 26 bis, rue de Saint Petersbourg 75800 PARIS cedex 08 Téléphone : 33 (0)1 53 04 53 04 Télécopie : 33 (0)1 53 04 45 23 www.inpi.fr



## BREVET D'INVENTION CERTIFICAT D'UTILITE

26bis, rue de Saint-Pétersbourg 75800 Paris Cédex 08

Téléphone: 01 53.04.53.04 Télécopie: 01.42.94.86.54

Code de la propriété intellectuelle-livreVI

REQUÊTE EN DÉLIVRANCE

DATE DE REMISE DES PIÈCES

N° D'ENREGISTREMENT NATIONAL:
DÉPARTEMENT DE DÉPÔT:
DATE DE DÉPÔT:

Unique de dessier: B14303.3/DB DD2478

Jean LEHU
BREVATOME
3, rue du Docteur Lanceraux
75008 PARIS
France

Vos références pour ce dossier: B14303.3/DB DD2478

1 NATURE DE LA DEMANDE			
Demande de brevet			
2 TITRE DE L'INVENTION			DOCTOR OF EARDICATION DUINE
	PILE A COMBUSTIBLE TELLE PILE.	PLANAIRE ET P	ROCEDE DE FABRICATION D'UNE
3 DECLARATION DE PRIORITE OU REQUETE DU BENEFICE DE LA DATE DE DEPOT D'UNE DEMANDE ANTERIEURE FRANÇAISE	Pays ou organisation	Date	N°
4-1 DEMANDEUR	·	VEDOUE ATOMIC	NIE.
Nom Rue Code postal et ville Pays Nationalité Forme juridique	COMMISSARIAT A L'E 31-33, rue de la Fédéra 75752 PARIS 15ème France France Etablissement Public de	tion	lifique, technique et Ind
5A MANDATAIRE			
Nom Prénom Qualité Cabinet ou Soclété Rue Code postal et ville N° de téléphone N° de télécopie Courrier électronique	LEHU Jean Liste spéciale: 422-5 Sa BREVATOME 3, rue du Docteur Lanc 75008 PARIS 01 53 83 94 00 01 45 63 83 33 brevets.patents@breve	eraux	éral: 7068 Détails
6 DOCUMENTS ET FICHIERS JOINTS		15	D 12, R 2, AB 1
Texte du brevet Dessins	textebrevet.pdf dessins.pdf	3	page 3, figures 9, Abrégé: page 1, Fig.3
Désignation d'inventeurs Pouvoir général			

7 MODE DE PAIEMENT				
Mode de paiement	Prélèvement	Prélèvement du compte courant		
Numéro du compte client	024			
8 RAPPORT DE RECHERCHE				
Etablissement immédiat				
9 REDEVANCES JOINTES	Devise Devise	Taux Taux	Quantité	Montant à payer
062 Dépôt	EURO	0.00	1.00	0.00
063 Rapport de recherche (R.R.)	EURO	320.00	1.00	320.00
Total à acquitter	EURO			320.00

La loi n°78-17 du 6 janvier 1978 relative à l'informatique aux fichiers et aux libertés s'applique aux réponses faites à ce formulaire. Elle garantit un droit d'accès et de rectification pour les données vous concernant auprès de l'INPI.

Signé par Signataire: FR, Brevatome, J.Lehu Emetteur du certificat: DE, D-Trust GmbH, D-Trust for EPO 2.0 Fonction Mandataire agréé (Mandataire 1)

Þ



## BREVET D'INVENTION CERTIFICAT D'UTILITE

## Réception électronique de la soumission

Il est certifié par la présente qu'une demande de brevet (ou de certificat d'utilité) a été reçue par le biais du dépôt électronique sécurisé de l'INPI. Après réception, un numéro d'enregistrement et une date de réception ont été attribués automatiquement.

Demande de brevet: X Demande de CU:

ATE DE RECEPTION YPE DE DEPOT	18 mars 2003 INPI (PARIS) - Dépôt électronique	Dépôt en ligne: X Dépôt sur support CD:
Iº D'ENREGISTREMENT NATIONAL ATTRIBUE PAR L'INPI ∕os références pour ce dossier	0350051 B14303.3/DB DD2478	
DEMANDEUR Nom ou dénomination sociale Nombre de demandeur Pays	COMMISSARIAT A L'ENERGIE AT 1 FR	OMIQUE
TITRE DE L'INVENTION PILE A COMBUSTIBLE PLANAIRE ET PR	OCEDE DE FABRICATION D'UNE TE	ELLE PILE.
DOCUMENTS ENVOYES  pkgheader.xml  package-data.xml  Design.PDF  FR-office-specific-info.xml	dessins.pdf Requetefr.PDF ValidLog.PDF application-body.xml	indication-bio-deposit.xml fee-sheet.xml textebrevet.pdf request.xml
EFFECTUE PAR Effectué par. • Date et heure de réception électronique: Empreinte officielle du dépôt	J.Lehu 18 mars 2003 10:34:56 D8:4D:C4:58:8E:22:80:34:8F:F0:60:06	:81:12:40:BF:09:E4:0B:36 / PARIS, Section Dépô

SIEGE SOCIAL INSTITUT 26 bis, rue do Saint Petersbourg
NATIONAL DE 75800 PARIS cedox 09 LA PROPRIETE Téléphone : 01 53 04 53 04
INDUSTRIELLE Télécopie : 01 42 93 59 30

1

## PILE A COMBUSTIBLE PLANAIRE ET PROCEDE DE FABRICATION D'UNE TELLE PILE

#### DESCRIPTION

#### 5 DOMAINE TECHNIQUE

L'invention concerne une pile à combustible planaire et le procédé de fabrication d'une telle pile.

Le domaine de l'invention est celui des 10 piles à combustible planaires, par exemple · à électrolyte polymère solide, et de leur application à la génération de puissances électriques de quelques centaines milliwatts à quelques centaines de kilowatts pour des applications stationnaires, par exemple pour des centrales ou des chaudières, 15 applications de transports, par exemple pour des véhicules terrestres, maritimes, ou aériens, et des applications portables et transportables, par exemple pour des téléphones ou des ordinateurs portables.

20

#### ETAT DE LA TECHNIQUE ANTERIEURE

A l'heure actuelle, la plupart des piles à combustible sont bâties sur la base d'un ensemble « sandwich » composé de deux électrodes disposées de part et d'autre d'un électrolyte. Les électrodes sont generalement constituées d'une couche de diffusion sur laquelle est déposée une couche active (couche catalytique). Un réactif différent arrive sur chaque surface extérieure des deux électrodes, à savoir un

comburant. Ceux-ci réagissent un carburant et l'intermédiaire de l'élément chimiquement par électrolytique, de sorte qu'il est possible de prélever une tension électrique aux bornes des deux électrodes.

le carburant est l'hydrogène et le Si comburant l'oxygène, une oxydation de l'hydrogène a lieu à l'anode, tandis qu'à la cathode se produit la réduction de l'oxygène en eau.

Chaque électrode est donc le siège d'une résultante, électrochimique, la tension réaction différence de potentiel entre ces deux réactions, est généralement d'environ 1 volt (à courant nul) puisque l'on réalise à l'anode l'oxydation de l'hydrogène en : protons et à la cathode la réduction de l'oxygène en faible tension constitue le principal " Cette handicap de telles piles par rapport aux batteries classiques, dont la tension élémentaire peut monter : jusqu'à 4 volts (exemple du couple Li/C). Pour remédier 🐇 à ce problème, il est d'usage d'empiler un grand nombre de tels éléments suivant une technologie dite « filtre-20 presse ». Mais cette technologie présente un problème de mauvaise distribution des gaz dans chaque cellule et de perte d'étanchéité dans l'empilement, aggravés par la multiplication du nombre d'éléments empilés. plus, les plaques bipolaires séparant deux cellules 25 élémentaires doivent répondre aux critères physiques et chimiques spécifiques suivants :

- très bonne conductivité électronique,
- imperméabilité aux gaz,
- faible masse,

5

10

15

- résistance chimique à l'eau, à l'oxygène et à l'hydrogène,
  - faible coût matière,
  - bonne usinabilité.
- Aucune technologie de plaque bipolaire ne répond aujourd'hui à de tels critères, qui nécessitent l'emploi d'une technique d'usinage onéreuse, ou l'emploi de matériaux très coûteux. De plus, ce type d'empilement est généralement de géométrie parallélépipédique, peu propice à une intégration.

Afin de pallier de tels inconvénients, le document référencé [1] en fin de description décrit une nouvelle géométrie de pile à combustible permettant d'associer sur une même membrane plusieurs paires d'électrodes, et d'augmenter artificiellement la tension élémentaire. Cette association se fait par un empilement de matériaux décalés les uns par rapport aux autres. Elle nécessite l'utilisation de plaques distributrices de gaz électroniquement isolantes.

Comme illustré sur la figure 1, une telle pile à combustible est constituée d'un assemblage de plusieurs piles individuelles 10, disposées les unes à côté, ou derrière, les autres, comprenant chacune une anode 11 et une cathode 12, enserrant une couche électrolytique 13. Ces piles individuelles 10 sont séparées entre elles par des zones isolantes 17, et sont connectées entre elles par des pièces conductrices 14, une première extrémité 15 d'une pièce conductrice 14 étant connectée à la cathode 12 d'une première pile 30 10, et une deuxième extrémité 16 de cette pièce

conductrice 14 étant reliée à l'anode 11 d'une autre pile 10 qui lui est adjacente.

Un tel assemblage est difficile à exécuter non seulement pour la réalisation à petite échelle des différentes piles individuelles 10 mais aussi pour la réalisation de leur connexion électrique. De plus, des problèmes d'étanchéité subsistent.

inconvénients, à ces remédier Pour procédé propose un [2] référencé document fabrication d'un assemblage d'éléments de base de piles à combustible formant plusieurs piles élémentaires, en déposant sur une trame isolante, en plusieurs étapes forme de sous différents composants successives, suspensions.

La figure 2 représente un tel assemblage 15 d'éléments de base, une fois terminé. Tous les éléments assemblage sont parties des de cet fonctionnels déposées les unes après les autres sur et/ou dans une plaque en matériau en trame dont l'épaisseur correspond à l'épaisseur d'une couche de conducteur ionique. Cet 20 joint d'abord, un tout assemblage .comprend, périphérique 21, placé sur toute l'épaisseur de la celle-ci. Ce périphérie de la plaque périphérique 21 est en matériau inerte chimiquement et Les électroniquement et ioniquement. 25 isolant différentes piles élémentaires de cet assemblage sont 22 placée sur une constituées chacune d'une anode première surface de la plaque, une cathode 23 placée sur la surface opposée de la plaque et un conducteur ionique 24 situé entre l'anode 22 et la cathode 23, sur 30 toute l'épaisseur de la plaque. L'anode 22 dépasse d'un

côté du conducteur ionique 24 et la cathode 23 dépasse du conducteur ionique 24 du côté opposé à l'anode. De cette manière, chaque partie dépassante d'une anode 22 et d'une cathode 23 se trouve en regard, à l'épaisseur 5 de la plaque près, d'une cathode 23 ou d'une anode 22 d'une pile voisine, exception faite pour l'anode 22 d'une première pile d'extrémité et la cathode 23 de l'autre pile d'extrémité. Un conducteur électronique 26, déposé dans toute l'épaisseur de la plaque, permet de relier l'anode 22 d'une pile de rangs n à la cathode 10 23 de la pile voisine de rang n + 1, qui est placée en regard de celle-ci, la tension Ui (o<i<5) de l'une étant reportée sur l'autre. Des couches isolantes verticales 25 séparent chaque conducteur électronique 15 26 des deux parties de conducteur ionique 24 qui lui sont adjacentes. La distance a entre deux couches isolantes verticales voisines 25 peut être de l'ordre de 5 millimètres. Un premier collecteur électronique 27 est placé sur l'anode 22 dépassant d'une première pile 20 d'extrémité et un second collecteur 27 est placé sur la cathode 23 dépassant de l'autre pile d'extrémité.

Les problèmes majeurs rencontrés dans l'élaboration de ce type de pile à combustible planaire sont d'une part l'étanchéité des interfaces matériaux conducteur ionique/conducteur électronique, et d'autre part les faibles valeurs de conductivité électronique obtenues dans les « traversées de courant ». faibles valeurs de conductivité provoquent de fortes chutes ohmiques entraînant des pertes de performances et un échauffement de ces traversées (effet Joule).

25

L'invention a pour objet de résoudre de tels problèmes.

#### EXPOSÉ DE L'INVENTION

5

10

L'invention concerne une pile à combustible planaire comportant un ensemble électrode-membrane-électrode, caractérisée en ce que la membrane comporte un tissu dont les fibres de chaîne sont des fibres continues en matériau isolant électrique et dont les fibres de trame sont alternativement des fibres en matériau isolant et des fibres en matériau conducteur électrique, pour former respectivement des zones isolantes et des zones conductrices.

- 15 Avantageusement les fibres en matériau isolant peuvent être en polymère ou en verre inerte.

  Les fibres en matériau conducteur électrique peuvent être des fibres de carbone ou des fibres d'acier inox.
- 20 Une telle pile présente, notamment, les avantages suivants :
  - une simplification de fabrication en supprimant l'étape de dépôt des couches isolantes verticales,
- 25 une augmentation de performance par l'apport d'un conducteur électronique massif dans les traversées électriques,
- une taille des conducteurs électroniques permettant d'accroître sur une même surface le nombre 30 de paires d'électrodes, augmentant ainsi la tension de la pile.

L'invention concerne également un procédé de fabrication d'une pile à combustible planaire, qui comprend les étapes suivantes :

- 5 découpe, à la forme souhaitée, d'un morceau de matériau,
  - dépôt d'une couche de joint sur toute l'épaisseur de la périphérique de ce morceau de matériau en légère surépaisseur,
- dépôt d'un conducteur ionique dans toute l'épaisseur de ce morceau de matériau,
  - dépôt des anodes sur une première surface du morceau de matériau ainsi rempli et des cathodes sur l'autre surface de celui-ci,
- dépôt de colle cteurs électronique à une des deux extrémités de l'ensemble d'anodes et à l'autre extrémité de l'ensemble de cathodes,

caractérisé en ce que le morceau de matériau est un morceau de tissu dont les fibres de chaîne sont des fibres continues en matériau isolant 20 électrique et les fibres de trame sont alternativement fibres en matériau isolant et des fibres matériau conducteur électrique pour former respectivement des zones isolantes et des zones 25 conductrices.

Avantageusement on dépose un joint isolant de part et d'autre de chaque zone conductrice.

A cause de la structure tissée de ce 30 morceau de tissu, les fibres sont en contact intime électrique, contrairement aux dispositifs de l'art connu où les grains conducteurs sont noyés dans un liant et où la continuité électrique n'est pas absolue. Ce morceau de tissu provoque donc une augmentation de la conductivité d'un facteur 2 à 10 ce qui permet d'améliorer les performances de la pile et de diminuer la taille des zones isolantes et donc celles des piles.

Les applications visées par un tel type de technologie de pile à combustible (monobloc ou polyéléments), sont des systèmes légers et portables, nécessitant des alimentations électriques de tension supérieure à 1 volt, et dans lesquels se posent les problèmes de poids et de formes.

Le combustible alimentant une pile, ainsi construite, peut être stocké sous forme de gaz comprimé à l'extérieur de la pile ou bien sous forme adsorbée dans des hydrures, qui peuvent être réalisés sous forme de feuilles d'hydrure au contact des anodes.

#### 20 BRÈVE DESCRIPTION DES DESSINS

5

10

15

La figure 1 illustre un premier dispositif de l'art connu.

La figure 2 illustre un second dispositif 25 de l'art connu.

La figure 3 illustre une trame localement conductrice selon l'invention.

Les figures 4 à 6 illustrent respectivement les étapes du procédé de l'invention à la fois dans une vue en coupe transversale (figures 4A, 5A et 6A) et dans une vue de dessus (figures 4B, 5B et 6B).

#### EXPOSÉ DÉTAILLÉ DE MODES DE RÉALISATION PARTICULIERS

la réalisation de Dans piles planaires juxtaposées de l'art connu, 5 comme illustré figure 2, on utilise une matrice poreuse que l'on remplit localement de matériau approprié à la fonction que doit jouer la zone remplie. Une telle solution présente des problèmes d'étanchéité aux interfaces des 10 différentes zones. De plus, la conductivité électronique n'est pas obligatoirement élevée de par la structure même de la matière poreuse.

Pour pallier de tels inconvénients l'invention consiste à utiliser, à la place de 15 matrice poreuse, un tissu 30 de fibres d'un seul tenant. Comme illustré sur la figure 3, les fibres de chaîne 31 sont continues d'un bout à l'autre de la pile (il n'y a pas d'interface, donc pas de perte de place) et sont en un matériau isolant électrique. Les fibres 20 de trame sont réalisées alternativement par des fibres isolantes 31' ou des fibres conductrices 32 de manière à réaliser les différentes fonctions d'un élément de pile et juxtaposer les éléments pour constituer une pile.

Les fibres isolantes 31 et 31' sont par exemple des fibres polymères ou en verre inerte chimiquement. Les fibres conductrices 32 sont par exemple des fibres de carbone ou d'acier inox.

Ces fibres conductrices 32 forment, comme 30 illustré sur la figure 3, des zones conductrices 33 afin d'assurer localement sur une largeur b une

conductivité électronique dans l'épaisseur de la trame. Cette largeur b peut être de l'ordre de 2 millimètres, pour une surface de tissu d'environ 1 mètre carré, et une épaisseur comprise entre 20 micromètres et 100 micromètres.

Comme illustré sur la figure 3, ce tissu 30 peut être réalisé par une toile classique tissée à angle droit. Le nombre de fibres et l'angle de tissage peuvent varier en fonction de la géométrie choisie pour la pile.

Le procédé de fabrication d'une telle pile à combustible planaire comprend les étapes suivantes :

- découpe, à la forme souhaitée, du morceau
   de tissu 30 qui comporte des zones isolantes 34 séparées par des zones conductrices 33,
  - dépôt d'une couche de joint 40 sur toute l'épaisseur de la périphérique de ce morceau de tissu 30 en légère surépaisseur,
- 20 dépôt d'un conducteur ionique 41 dans toute l'épaisseur de ce morceau de tissu 30
  - dépôt des anodes 44 sur une première surface du morceau de tissu ainsi rempli et des cathodes 45 sur l'autre surface,
- dépôt (non illustré sur les figures 4 à 6) de collecteurs électroniques à une des deux extrémités de l'ensemble d'anodes 44, et à l'autre extrémité de l'ensemble de cathodes 45.

Les différentes étapes de dépôt prévues ci-30 dessus sont avantageusement réalisées à l'aide de masques.

Pour améliorer le fonctionnement, en évitant toute fuite ionique, il est possible de déposer des joints isolants de part et d'autre de chaque zone conductrice 33.

5 Ainsi suivant ces étapes illustrées figures 4 à 6 il est possible de réaliser des piles à combustibles planaires possédant des performances supérieures à celle obtenues par les piles décrites dans le document référencé [2], et une tenue mécanique renforcée par la suppression d'une interface conducteur 10 ionique/conducteur électronique, limitant également les risques fuites internes pouvant provoquer de des mélanges hydrogène/oxygène.

La structure de pile de l'invention présentée ci-dessus n'est qu'un exemple. L'invention peut s'appliquer aux micro-piles par exemple matricées sur un support ou à toutes les piles qui possèdent sur un même plan, des surfaces conductrices électriques et des surfaces conductrices ioniques séparées.

### REFERENCES

[1] US 5, 863,672

5

[2] FR 2819107

#### REVENDICATIONS

- 1. Pile à combustible planaire comportant un ensemble électrode-membrane-électrode, caractérisé e en ce que la membrane comporte un tissu dont les fibres de chaîne (31) sont des fibres continues en matériau isolant électrique et dont les fibres de trame sont alternativement des fibres en matériau isolant (31') et des fibres en matériau conducteur électrique (32), pour former respectivement des zones isolantes (34) et des zones conductrices (33).
- Pile à combustible selon la revendication 1, dans laquelle les fibres en matériau
   isolant (31, 31') sont en polymère ou en verre inerte.
- 3. Pile à combustible selon la revendication 1, dans laquelle les fibres en matériau conducteur électrique (32) sont des fibres de carbone ou des fibres d'acier inox.
  - 4. Procédé de fabrication d'une pile à combustible planaire, qui comprend les étapes suivantes :
- 25 , découpe, à la forme souhaitée, d'un morceau (30) de matériau,
  - dépôt d'une couche de joint (40) sur toute l'épaisseur de la périphérique de ce morceau de matériau en légère surépaisseur,
- dépôt d'un conducteur ionique (41) dans toute l'épaisseur de ce morceau de matériau,

- dépôt des anodes (44) sur une première surface du morceau de matériau ainsi rempli et des cathodes (45) sur l'autre surface,
- dépôt de collecteurs électronique à une 5 des deux extrémité de l'ensemble d'anodes (44) et à l'autre extrémité de l'ensemble de cathodes (45),

caractérisé en ce que le morceau de matériau est un morceau de tissu dont les fibres de chaînes (31) sont des fibres continues en matériau isolant électrique et dont les fibres de trame sont alternativement des fibres en matériau isolant (31') et des fibres en matériau conducteur électrique (32) pour former respectivement des zones isolantes (34) et des zones conductrices (33).

15

10

5. Procédé selon la revendication 4, dans lequel on dépose des joints isolants de part et d'autre des zones conductrices (33) du tissu (30).

1/3.

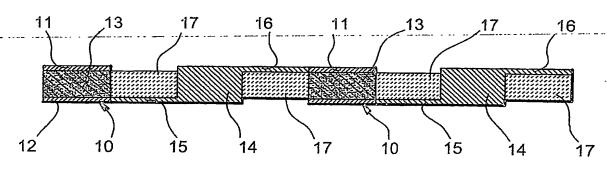


FIG. 1

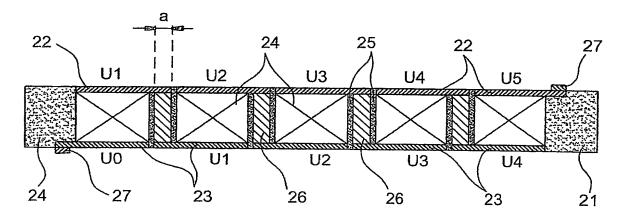


FIG. 2

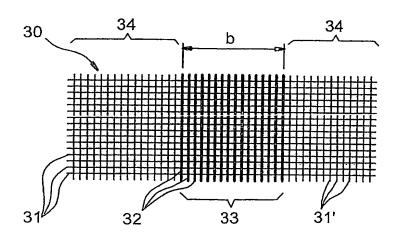
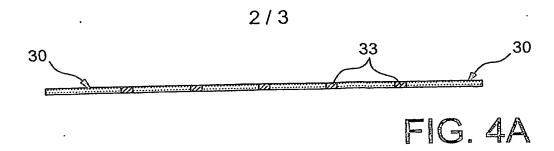


FIG. 3



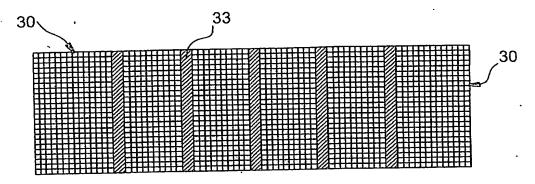
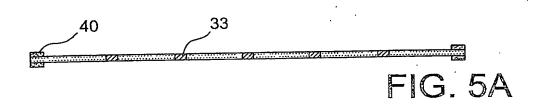
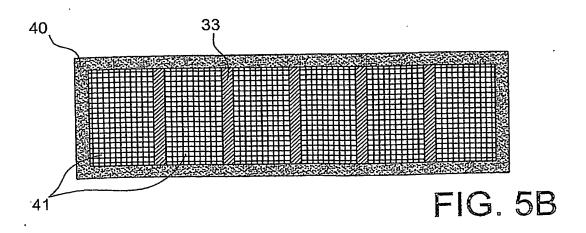
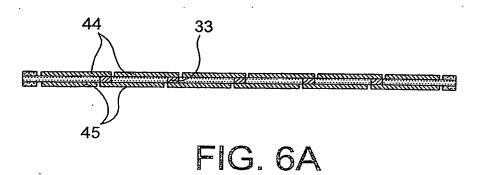


FIG. 4B







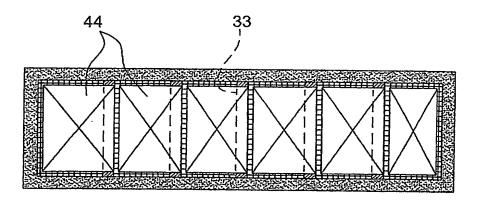


FIG. 6B



## BREVET D'INVENTION CERTIFICAT D'UTILITE

## Désignation de l'inventeur

(c) and decion	B14303.3/DB DD2478
Vos références pour ce dossier	0350081.
N°D'ENREGISTREMENT NATIONAL	1 050051.
TITRE DE L'INVENTION	
	PILE A COMBUSTIBLE PLANAIRE ET PROCEDE DE FABRICATION D'UNE TELLE PILE.
LE(S) DEMANDEUR(S) OU LE(S)	
MANDATAIRE(S):	
DESIGNE(NT) EN TANT	
QU'INVENTEUR(S):	
Inventeur 1	
Nom	MOSDALE
Prénoms	Renaut
Rue	15, rue du 11 Novembre
Code postal et ville	38640 CLAIX
Société d'appartenance	

La loi n°78-17 du 6 janvier 1978 relative à l'informatique aux fichiers et aux libertés s'applique aux réponses faites à ce formulaire. Elle garantit un droit d'accès et de rectification pour les données vous concernant auprès de l'INPI.

PCT/FR20**04**/0**50109** 

# This Page is inserted by IFW Indexing and Scanning Operations and is not part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

BLACK BORDERS
IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
FADED TEXT OR DRAWING
BLURED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
SKEWED/SLANTED IMAGES
☐ COLORED OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
☐ REPERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
OTHER:

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.
As rescanning documents will not correct images problems checked, please do not report the problems to the IFW Image Problem Mailbox